

การกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ในเชื้อเพลิงไฮโดรเจนด้วยโลหะออกไซด์  
ผสมคอปเปอร์ ซีเรียมและ อลูมิเนียม ที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจล  
และโซลเจลขั้นตอนเดียว

REMOVAL OF CO CONTAMINATION IN HYDROGEN FUELS WITH  
MIXED OXIDE OF  $\text{CuO-CeO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  PREPARED BY SOL GEL  
AND SINGLE-STEP SOL GEL METHODS

พรไพบุลย์ พุทธคุณ, มาลัย วงศ์วรรณกานต์, คมกฤษ สว่างกาญจน์, เอกรัตน์ วงษ์แก้ว\*  
Pornpaiboon Phutthakoon, Malai Wongwanakan, Komgrit Sawangkan,  
Akkarat Wongkaew\*

คณะวิศวกรรมศาสตร์ มหาวิทยาลัยบูรพา อ.เมือง จ.ชลบุรี ประเทศไทย 20131

Faculty of Engineering, Burapha University, Mueang, Chonburi, Thailand, 20131

\*Corresponding author e-mail: akkarat@eng.buu.ac.th

วันที่เข้ารับ 28 สิงหาคม 2565

วันที่แก้ไขบทความ 14 ตุลาคม 2565

วันที่ตอบรับบทความ 19 ตุลาคม 2565

บทคัดย่อ

การกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ปริมาณน้อยออกจากรีฟอร์มก๊าซ ก่อนนำไปใช้กับเซลล์เชื้อเพลิงแบบเยื่อเมมเบรนแลกเปลี่ยนโปรตอนเป็นเรื่องสำคัญที่ต้องปฏิบัติ เพื่อเพิ่มอายุการใช้งานให้กับเซลล์เชื้อเพลิง เนื่องจากก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์มีความเป็นพิษต่อแพลทินัมที่ขั้วแอโนดของเซลล์เชื้อเพลิง ในงานวิจัยนี้ศึกษาความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาของโลหะออกไซด์ผสมคอปเปอร์ ซีเรียมและอลูมิเนียม เพื่อกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ในสภาวะที่มีก๊าซไฮโดรเจนในปริมาณมาก ด้วยปฏิกิริยาการเลือกเกิดการเผาไหม้ก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ โดยศึกษาผลกระทบวิธีการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาต่อโครงสร้าง และความสามารถในการเร่งปฏิกิริยา ตัวเร่งปฏิกิริยาถูกเตรียมด้วยวิธีโซลเจลและวิธีโซลเจลขั้นตอนเดียว และถูกนำไปวิเคราะห์คุณสมบัติเฉพาะได้แก่ โครงสร้างและขนาดผลึกเฉลี่ยด้วยวิธีเอ็กซ์เรย์ดิฟแฟรคชัน พื้นที่ผิวจำเพาะด้วยวิธีการดูดซับ-คายก๊าซไนโตรเจน ในการทดสอบความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาพบว่าในสภาวะที่ไม่มีก๊าซไฮโดรเจน ตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองให้ผลการเร่งปฏิกิริยาที่ใกล้เคียงกัน และเมื่อกระแสน้ำมีก๊าซไฮโดรเจนในปริมาณร้อยละ 50 โดยปริมาตร ตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจล ให้ผลการเร่งปฏิกิริยาที่ดีกว่าทั้งในค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ และค่าร้อยละการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน โดยก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ถูกกำจัดอย่างสมบูรณ์ที่อุณหภูมิ 180 องศาเซลเซียส ที่ค่าร้อยละการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน เท่ากับ 65.0 นอกจากนี้พบว่าก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์และน้ำส่งผลกระทบต่อความสามารถในการเร่งปฏิกิริยา โดยทำให้การเร่งปฏิกิริยาเกิดช้าลง

คำสำคัญ: โซลเจลชั้นตอนเดียว, อลูมิเนียมออกไซด์, คอปเปอร์ออกไซด์, ซีเรียมออกไซด์, ปฏิกริยาการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน

### Abstract

Removal of a small amount of carbon monoxide from reformed gas before feeding it to proton exchange membrane fuel cells (PEMFC) is crucial to be done in order to prolong the lifetime of PEMFC because carbon monoxide is poisonous to platinum-based anode of PEM fuel cell. The objective of this study was to investigate the ability of catalytic activities of  $\text{CuO/CeO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  catalysts prepared by sol gel and single-step sol gel methods get rid of the carbon monoxide when there is too much nitrogen by means of burning carbon monoxide. The impact of the preparation of the catalytic activities on the structure, the ability to catalyze activities and the catalyst formed by sol gel, single-step sol gel was used to analyze the certain characteristics, that is, the structure and average crystalline size by X-ray diffraction technique and specific surface areas by nitrogen-adsorption desorption technique. The test results of the ability of catalytic activities indicated that, under the condition where there is no hydrogen, both catalysts performed the similar activity to carbon monoxide oxidation reaction. Under the presence of 50%  $\text{H}_2$  in the gas stream, the catalyst prepared by sol gel performed the higher catalytic activity to the reaction than that prepared by single-step sol gel method. carbon monoxide was completely converted to carbon dioxide at  $180^\circ\text{C}$  with selectivity of 65.0. The presence of  $\text{CO}_2$  and  $\text{H}_2\text{O}$  was also studied. Both have a negative effect to the reaction.

**Keywords:** Single-step sol gel,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CuO}$ ,  $\text{CeO}_2$ , Selective CO oxidation reaction

### 1. บทนำ

ในการใช้ก๊าซไฮโดรเจนที่ผลิตมาจากปิโตรเลียม เป็นเชื้อเพลิงของเซลล์เชื้อเพลิงแบบเยื่อเมมเบรน แลกเปลี่ยนโปรตอน พบว่าทำให้ประสิทธิภาพการทำงานของระบบเซลล์เชื้อเพลิงจะลดลง หากมีก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ ( $\text{CO}$ ) ปะปนในเชื้อเพลิงไฮโดรเจน โดยปริมาณก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ดังกล่าวมาจากการบวนการผลิตไฮโดรเจนด้วยวิธีการปฏิรูปเชื้อเพลิงด้วยไอน้ำ และ เปลี่ยนก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ให้เป็นก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ผ่านปฏิกิริยา Water gas shift จะมีก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์เจือปนร้อยละ 0.5–1.0 โดยปริมาตร (Ebrahimi *et al.*, 2020) ก๊าซ

คาร์บอนมอนอกไซด์เพียง 100 พีพีเอ็ม สามารถลดประสิทธิภาพการทำงานของเซลล์เชื้อเพลิงแบบเยื่อเมมเบรนแลกเปลี่ยนโปรตอน (Qi *et al.*, 2020) ดังนั้นการกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ที่ปะปนมากับก๊าซไฮโดรเจนก่อนที่จะนำก๊าซไฮโดรเจนนี้ไปใช้กับเซลล์เชื้อเพลิงจึงเป็นสิ่งที่จำเป็น เพื่อเพิ่มอายุการใช้งานให้กับเซลล์เชื้อเพลิง Ratnasamy *et al.* (2004) ศึกษาการกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์โดยการเติมก๊าซออกซิเจน และมีการใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาเพื่อเร่งปฏิกิริยาการเผาไหม้ก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ โดยตัวเร่งปฏิกิริยาประเภทโลหะทรานซิชัน ซึ่งโลหะจำพวกนี้มีความว่องไวในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันสูง ราคาถูก แต่มีการสูญเสียประสิทธิภาพ เมื่อใช้เป็นเวลานาน (Sarma *et al.*, 2020) ดังนั้นจึงมีการนำโลหะเหล่านี้ไปใช้ร่วมกับโลหะประเภทอื่น Bae *et al.* (2005) การศึกษาปฏิกิริยาเลือกเผาไหม้ก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์โดยใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะผสมคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ พบว่าปริมาณคอปเปอร์ออกไซด์มีความสามารถในการช่วยเร่งปฏิกิริยาการเผาไหม้ก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ให้ดีขึ้น โดยปริมาณที่เหมาะสมในการใช้เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาในช่วงร้อยละ 10-20 โดยน้ำหนัก Huber *et al.* (2008) พบว่า ซีเรียมออกไซด์มีคุณสมบัติในการเพิ่มความว่องไวในการเกิดปฏิกิริยาเมื่อใช้ร่วมกับโลหะชนิดอื่น เพิ่มการกระจายตัวของโลหะที่ทำหน้าที่เป็นบริเวณเร่งปฏิกิริยาให้ดีขึ้น สามารถกักเก็บออกซิเจนในปฏิกิริยาออกซิเดชันและปล่อยออกซิเจนในปฏิกิริยารีดักชัน เมื่อคอปเปอร์ออกไซด์ และซีเรียมออกไซด์มีการกระจายตัวได้ดี มีขนาดผลึกเล็ก ในปฏิกิริยาการกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ด้วยการเผาไหม้ในสภาวะที่มีก๊าซไฮโดรเจนในปริมาณมาก จะทำให้การเลือกเกิดปฏิกิริยาเผาไหม้ก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์เกิดได้ดีกว่าปฏิกิริยาเผาไหม้ก๊าซไฮโดรเจน โดยคอปเปอร์ออกไซด์ร้อยละ 15-20 โดยน้ำหนักให้ผลการเร่งปฏิกิริยาที่ดี (Cortés *et al.*, 2008) นอกจากนี้ซีเรียมออกไซด์ขนาดเล็กจะส่งผลให้คอปเปอร์ออกไซด์เร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันได้ดีที่อุณหภูมิต่ำลง (Zang *et al.*, 2020) และ การมีปริมาณการสัมผัสระหว่างซีเรียมและคอปเปอร์ที่หนาแน่นก็ส่งผลดีต่อการเร่งปฏิกิริยาด้วย (Xu *et al.*, 2019) การเพิ่มการกระจายตัวของคอปเปอร์ออกไซด์และซีเรียมออกไซด์สามารถทำได้ด้วยการเติมสารออกไซด์ที่ทนต่อการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิ เช่น อลูมิเนียมออกไซด์ ให้กับตัวเร่งปฏิกิริยา วิธีการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาเป็นปัจจัยหนึ่งที่ส่งผลกระทบต่อความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาของตัวเร่งปฏิกิริยาโดยวิธีการโซลเจล เป็นวิธีการสังเคราะห์โลหะออกไซด์ผ่านปฏิกิริยาไฮโดรไลซิส และปฏิกิริยาการควบแน่นที่อุณหภูมิต่ำ สามารถควบคุมโครงสร้างในรูปแบบโครงสร้างร่างตาข่ายหรือโครงสร้างแบบโพลิเมอร์สายตรงได้ โดยโลหะออกไซด์สุดท้ายจะมีความพรุนสูงเนื่องจากในระหว่างการเตรียมมีการเปลี่ยนรูปแบบโซลเป็นเจลที่มีน้ำหรือตัวทำละลายแทรกอยู่ระหว่างช่องว่าง เมื่อทำการอบ เปรอย่างช้าๆ ตัวทำละลายเหล่านี้ระเหยออกไปจากโครงสร้าง เหลือรูพรุนจำนวนมากไว้ จึงเหมาะในการนำมาใช้เตรียมตัวรองรับที่ต้องการพื้นผิวจำเพาะสูง (Brinker & Scherer, 1990) Manasilp & Gulari (2002) ได้ศึกษาการเตรียมอลูมิเนียมออกไซด์ด้วยวิธีโซลเจล

พบว่าทำให้พื้นที่ผิวจำเพาะมีค่ามากถึง 200 ตารางเมตรต่อกรัม และเมื่อแพลทินัมถูกใช้เป็นตัวเร่งปฏิกิริยาแพลทินัมบนตัวรองรับอลูมิเนียมตัวเร่งปฏิกิริยามีความสามารถในการกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ ได้ดีมากคือ อุณหภูมิลดลงมากกว่า 30 องศาเซลเซียส และแพลทินัมกระจายตัวเป็นอย่างดี นอกจากนี้ Kakuta *et al.* (1997) พบว่าอลูมิเนียมออกไซด์ยังช่วยเพิ่มคุณสมบัติการกักเก็บออกซิเจนของซีเรียออกไซด์ด้วยซึ่งเป็นผลดีกับการเร่งปฏิกิริยาออกซิเดชันที่อุณหภูมิต่ำ (Chen *et al.*, 2008)

## 2. วัตถุประสงค์ของงานวิจัย

งานวิจัยนี้จึงมีจุดประสงค์เพื่อศึกษาผลกระทบของวิธีการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาต่อคุณสมบัติและความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาของโลหะออกไซด์ผสมคอปเปอร์ ซีเรีย และอลูมิเนียม ( $\text{CuO-CeO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ ) โดยตัวเร่งปฏิกิริยาถูกเตรียมด้วยวิธีโซลเจล และโซลเจลขั้นตอนเดียว และ ศึกษาผลกระทบของน้ำและแก๊สคาร์บอนไดออกไซด์ต่อความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน เพื่อนำไปใช้ในการกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ ในเชื้อเพลิงไฮโดรเจนก่อนที่จะนำเชื้อเพลิงไฮโดรเจนไปใช้กับเซลล์เชื้อเพลิงแบบเยื่อเมมเบรนแลกเปลี่ยนโปรตอน

## 3. วิธีดำเนินงานวิจัย

### 3.1 การเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา

โลหะออกไซด์ผสมคอปเปอร์ ซีเรีย และอลูมิเนียม ถูกเตรียมด้วยวิธีโซลเจล และ โซลเจลขั้นตอนเดียว องค์ประกอบของโลหะออกไซด์ผสมประกอบด้วยคอปเปอร์ออกไซด์ร้อยละ 20 ซีเรียออกไซด์ร้อยละ 74 และอลูมิเนียมออกไซด์ร้อยละ 6 โดยน้ำหนัก เริ่มจากละลายอลูมิเนียมไอโซโพรพอกไซด์ ที่ทราบปริมาณลงในน้ำกลั่น ที่อุณหภูมิประมาณ 80 องศาเซลเซียส กวนสารละลาย 30 นาที จากนั้นเติมกรดไนตริก เพื่อให้สารละลายเปลี่ยนจากขุ่นเป็นใส แล้วกวนสารละลายต่อไปอีก 24 ชั่วโมง ทำสารละลายให้เป็นเจลด้วยความร้อน จากนั้นบ่มเจลเป็นเวลา 24 ชั่วโมง ที่อุณหภูมิห้อง นำเจลที่ได้ไปอบที่อุณหภูมิ 110 องศาเซลเซียส 10 ชั่วโมง และเผาที่อุณหภูมิ 500 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 5 ชั่วโมง บดของแข็งที่ได้ให้ละเอียดและร่อนผ่านตะแกรงขนาด 80-100 เมช ได้เป็นตัวรองรับโลหะออกไซด์ผสมซีเรีย อลูมิเนียม จากนั้นนำคอปเปอร์ไนเตรตเติมลงในตัวรองรับที่เตรียมได้ด้วยวิธีผึ่งเคลือบแบบแห้ง นำของแข็งที่ได้อบและเผาที่อุณหภูมิข้างต้น นำไปบดและร่อนผ่านตะแกรงร่อนของแข็งที่ได้เป็นโลหะออกไซด์ผสมคอปเปอร์ ซีเรีย และอลูมิเนียม

สำหรับวิธีโซลเจลขั้นตอนเดียว มีขั้นตอนการทดลองเหมือนกับวิธีโซลเจล โดยหลังจากการเติมซีเรียไนเตรต และกวนสารละลายประมาณ 30 นาที ให้เติมคอปเปอร์ไนเตรตลงในสารละลาย

และกวนสารละลายต่อไปเป็นเวลา 24 ชั่วโมง จากนั้นทำสารละลายที่ได้ไปทำให้เป็นเจล บ่มเจล อบ และเผาที่อุณหภูมิเดียวกับกรณีโซลเจลจะได้สารประกอบโลหะออกไซด์ผสมคอปเปอร์ ซีเรียม อลูมิเนียม

### 3.2 การวิเคราะห์คุณสมบัติตัวเร่งปฏิกิริยา

การวิเคราะห์ขนาดผลึกของวัสดุด้วยเครื่องเอกซเรย์ดิฟแฟรคชัน (X-ray diffractometer, XRD) เพื่อวิเคราะห์โครงสร้าง องค์ประกอบทางเคมี และขนาดผลึกของตัวเร่งปฏิกิริยา เป็นเทคนิคที่อาศัยหลักการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ โดยใช้คอปเปอร์ (Cu) เป็นแหล่งกำเนิดรังสีเอ็กซ์ ทำการวิเคราะห์ที่มุม  $2\theta$  ระหว่าง 20-80 องศา ความดันไฟ 40 กิโลโวลต์ กระแส 30 มิลลิแอมแปร์ เก็บข้อมูลความเข้มการเลี้ยวเบนรังสีทุกๆ 0.02 องศา และใช้สมการ Scherrer ในการประมาณค่าขนาดผลึกเฉลี่ย (Hargreaves, 2016) โดยเลือกจากตำแหน่งพีคที่มีความชัดเจนที่สุด

การวิเคราะห์ด้วยพื้นที่ผิวจำเพาะและขนาดรูพรุนเฉลี่ยด้วยวิธีการดูดซับ-คายก๊าซไนโตรเจน ( $N_2$ -adsorption-desorption method) ด้วยเครื่อง Autosorption 1C บริษัท Quantachrome ใช้สารตัวอย่างประมาณ 100 มิลลิกรัม ก่อนการทดสอบต้องให้ความร้อนวัสดุตัวอย่างเพื่อไล่ความชื้นและโมเลกุลของสารดูดซับชนิดอื่นให้ออกจากผิวหน้าของวัสดุตัวอย่างที่อุณหภูมิ 300 องศาเซลเซียส ข้อมูลที่เครื่องบันทึกผลคือค่าความดันสัมพัทธ์ (P/Po) และปริมาตรของแก๊สไนโตรเจนที่ถูกดูดซับลงบนวัสดุตัวอย่าง (V) ค่าความดันสัมพัทธ์และปริมาตรของแก๊สไนโตรเจนที่ถูกดูดซับที่ได้ และใช้สมการ Brunauer-Emmett-Teller (BET) surface area analysis ในการคำนวณพื้นที่ผิวจำเพาะ (Walton & Snurr, 2007)

### 3.3 การทดสอบการเร่งปฏิกิริยา

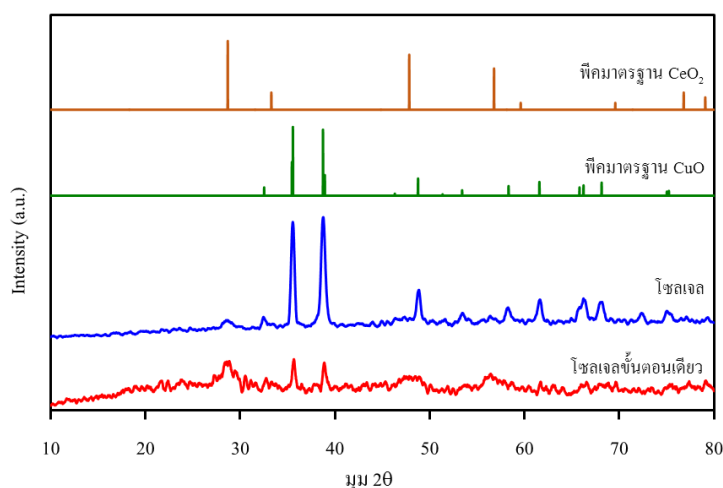
การทดสอบความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาจะทำในเครื่องปฏิกรณ์แก้ว อุณหภูมิในการเกิดปฏิกิริยาวัดได้ด้วยเทอร์โมคัปเปิลชนิดเคที่สัมผัสผิวหน้าของตัวเร่งปฏิกิริยา ควบคุมอุณหภูมิระหว่างการทำปฏิกิริยาด้วยตัวควบคุมอุณหภูมิ ปฏิริยาที่สนใจทดสอบได้แก่ ปฏิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน และปฏิกิริยาการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน ใช้ตัวเร่งปฏิกิริยา 80 มิลลิกรัม และอัตราการไหลเชิงปริมาตรรวม 100 ลูกบาศก์เซนติเมตรต่อนาที่ โดยสถานะที่ใช้ในการทดสอบสำหรับปฏิกิริยาแรกคือ ก๊าซผสมประกอบด้วยก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ร้อยละ 1 โดยปริมาตร ก๊าซออกซิเจนร้อยละ 1 โดยปริมาตร และ ก๊าซฮีเลียมร้อยละ 98 โดยปริมาตร และสำหรับปฏิกิริยาหลัง ก๊าซผสมประกอบด้วยก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ ร้อยละ 1 โดยปริมาตร ก๊าซออกซิเจนร้อยละ 1 โดยปริมาตร ก๊าซไนโตรเจนร้อยละ 50 โดยปริมาตร และที่เหลือคือก๊าซฮีเลียม เครื่องแก๊สโครมาโตกราฟฟีถูกใช้ในการวิเคราะห์องค์ประกอบของก๊าซผสมที่ทางเข้า และทางออกของเครื่องปฏิกรณ์ โดยใช้ตัวตรวจวัดแบบ TCD และคอลัมน์ที่ใช้ในการแยกองค์ประกอบและปริมาณก๊าซ คือ โมเลกุลลาซีฟ ที่ทางเข้าเครื่องแก๊สโครมาโตกราฟฟี จะมีตัวดักน้ำเพื่อป้องกัน

ไม่ให้น้ำเข้าไปในคอลัมน์ระหว่างการวิเคราะห์ ค่าร้อยละการเลือกเกิดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ ออกซิเดชันคำนวณจากค่าร้อยละการใช้ออกซิเจนในปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันต่อร้อยละการใช้ออกซิเจนในปฏิกิริยารวมทั้งหมด ทั้งนี้พิจารณาว่าไม่มีปฏิกิริยาข้างเคียงเกิดขึ้น โดยเฉพาะปฏิกิริยาการเกิดก๊าซมีเทน

#### 4. ผลการวิจัยและการอภิปรายผล

##### 4.1 คุณสมบัติจำเพาะของตัวเร่งปฏิกิริยา

การผลวิเคราะห์โครงสร้างและองค์ประกอบทางเคมีของสารตัวอย่างด้วยเทคนิคเอ็กซ์เรย์ดิฟแฟรคชัน แสดงดังภาพที่ 1

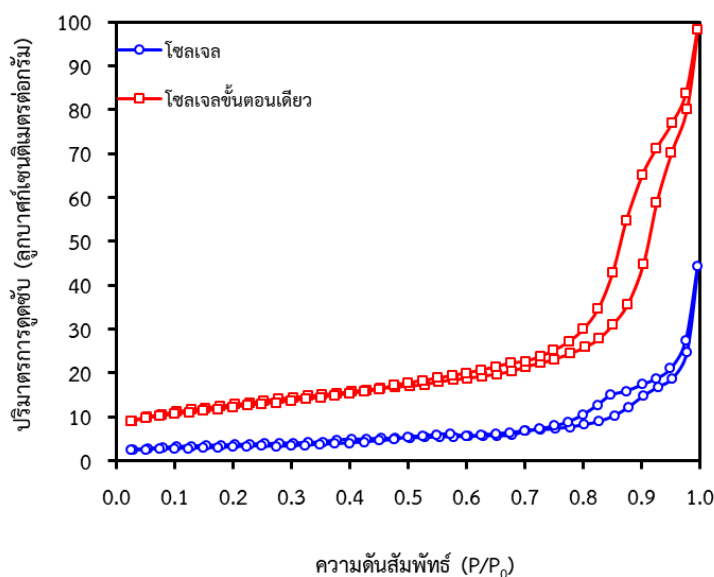


ภาพที่ 1 รูปแบบ XRD ของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจล และวิธีโซลเจลชั้นคอนเตียว

ภาพที่ 1 เป็นผลการวิเคราะห์ด้วยเทคนิคเอ็กซ์เรย์ดิฟแฟรคชัน โดยตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองมีรูปแบบ XRD ที่คล้ายกันคือมีพีคปรากฏที่ตำแหน่งมุม  $2\theta$  เดียวกันซึ่งตรงกับรูปแบบพีคมาตรฐานของคอปเปอร์ออกไซด์ในรูปแบบ CuO ที่มีโครงสร้างผลึกแบบ Base-centered monoclinic (JCPDS:00-002-1040) โดยพีคปรากฏที่ตำแหน่ง  $2\theta$  เท่ากับ 32.5, 35.5, 38.7, 48.7, 53.4, 58.3, 61.6, 65.8, 68.1 และ 75.2 ตามลำดับ และพบพีคตรงตามพีคมาตรฐานของซีเรียมออกไซด์ในรูปแบบ CeO<sub>2</sub> โครงสร้างผลึกแบบ Face-centered cubic (JCPDS:00-001-0800) ที่ตำแหน่งมุม  $2\theta$  เท่ากับ 28.5, 33.1, 47.5, 56.3, 59.9 และ 69.4 และ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ในรูปแบบบอสนันฐาน (JCPDS:00-037-140) ผลการวิเคราะห์แสดงให้เห็นว่า CuO-CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจล และวิธีโซลเจลแบบ

ขั้นตอนเดียว ต่างได้โลหะออกไซด์ในรูปแบบโครงสร้างและองค์ประกอบทางเคมีเดียวกัน คือ  $\text{CuO}$   $\text{CeO}_2$  และ  $\text{Al}_2\text{O}_3$

ผลการวิเคราะห์ด้วยเทคนิค  $\text{N}_2$  adsorption-desorption เพื่อพิจารณาไอโซเทอร์มการดูดซับของ  $\text{CuO-CeO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  ที่เตรียมด้วยวิธีโซล เจล และวิธีโซล เจลแบบขั้นตอนเดียว แสดงดังภาพที่ 2



ภาพที่ 2 ไอโซเทอร์มการดูดซับก๊าซไนโตรเจนของตัวเร่งปฏิกิริยา  $\text{CuO-CeO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  ที่เตรียมด้วยวิธีโซล เจล และวิธีโซล เจลแบบขั้นตอนเดียว

รูปแบบไอโซเทอร์มในภาพที่ 2 ตรงกับลักษณะของกระบวนการดูดซับรูปแบบที่ IV (Type IV) แสดงว่าตัวเร่งปฏิกิริยา  $\text{CuO-CeO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  ที่เตรียมได้มีขนาดรูพรุนอยู่ในระดับเมโซ (Mesoporous) คือมีเส้นผ่านศูนย์กลางระหว่าง 2-50 นาโนเมตร มีการดูดซับแก๊สไนโตรเจนแบบหลายชั้น (Multiple layers) และมี Capillary condensation เกิดขึ้นในรูพรุนจึงเกิด Hysteresis loop แบบ H3 คือเป็นวัสดุที่มีลักษณะ Non-rigid aggregates of plate-like particles (Thommes, 2010) ผลการวิเคราะห์ทั้งสองเทคนิคสามารถนำมาคำนวณขนาดผลึกเฉลี่ย  $\text{CuO}$  และ  $\text{CeO}_2$  ที่คำนวณจากรูปแบบ XRD ที่ระนาบ (111) ด้วยสมการ Scherrer ค่าพื้นที่ผิวจำเพาะตามสมการ Brunauer-Emmett-Teller และเทลเลอร์ (Brunauer, Emmett and Teller, BET) และวิเคราะห์ขนาดรูพรุนเฉลี่ยด้วยวิธี Barrett, Joyner and Halenda (BJH method) ผลการคำนวณแสดงดังตารางที่ 1

ตารางที่ 1 แสดงผลการวิเคราะห์ขนาดผลึกของคอปเปอร์ออกไซด์ ซีเรียมออกไซด์ พื้นที่ผิวจำเพาะ และขนาดรูพรุนเฉลี่ยของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจลและโซลเจลขั้นตอนเดียว ผลการวิเคราะห์ พบว่า ตัวเร่งปฏิกิริยาที่ถูกเตรียมด้วยวิธีโซลเจลขั้นตอนเดียวมีขนาดผลึกของคอปเปอร์

ออกไซด์ใหญ่กว่าคอปเปอร์ออกไซด์ที่ถูกเตรียมด้วยวิธีโซลเจล ขณะที่ซีเรียมออกไซด์มีขนาดใกล้เคียงกัน และพื้นที่ผิวจำเพาะของตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองใกล้เคียงกัน คือตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจลชั้นตอนเดียวมีพื้นที่ผิวจำเพาะเท่ากับ 53.9 ตารางเมตรต่อกรัม ซึ่งสูงกว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจลที่มีพื้นที่ผิวจำเพาะ 48.5 ตารางเมตรต่อกรัม และขนาดรูพรุนเฉลี่ยมีค่าใกล้เคียงกัน (Esposito, 2019)

**ตารางที่ 1** ขนาดของผลึก พื้นที่ผิวจำเพาะ และขนาดรูพรุนเฉลี่ยของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจล และวิธีโซลเจลชั้นตอนเดียว

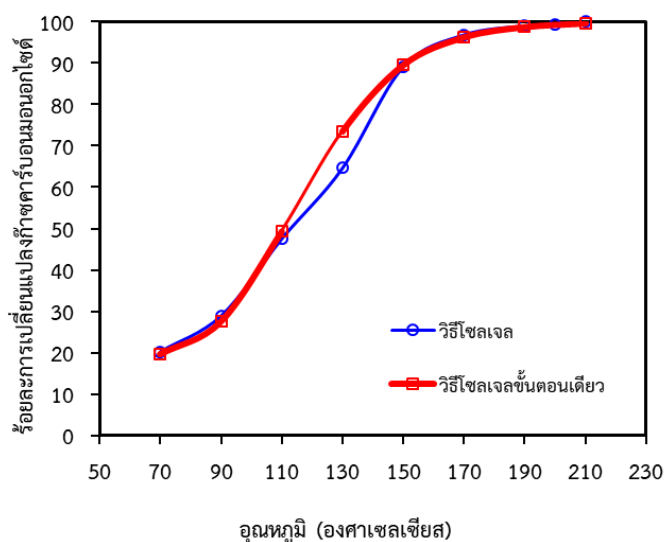
| วิธีการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา | ขนาดของผลึก (นาโนเมตร) |      | พื้นที่ผิวจำเพาะ (ตารางเมตรต่อกรัม) | ขนาดรูพรุนเฉลี่ย (นาโนเมตร) |
|-------------------------------|------------------------|------|-------------------------------------|-----------------------------|
|                               | CeO <sub>2</sub>       | CuO  |                                     |                             |
| โซลเจล                        | 7.4                    | 15.6 | 48.5                                | 6.5                         |
| โซลเจลชั้นตอนเดียว            | 6.0                    | 22.4 | 53.9                                | 6.0                         |

#### 4.2 การทดสอบการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน

ผลการทดสอบความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน ในสภาวะไร้ก๊าซไฮโดรเจน สำหรับตัวเร่งปฏิกิริยา CuO-CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจล และวิธีโซลเจลชั้นตอนเดียว แสดงดังภาพที่ 3

ภาพที่ 3 แขนงตั้งแสดงค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ และแกนนอนแสดงอุณหภูมิในการทำปฏิกิริยา พบว่า ตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจล และโซลเจลชั้นตอนเดียว แสดงแนวโน้มในการเร่งปฏิกิริยาใกล้เคียงกัน คือ ค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์มีค่าเพิ่มขึ้น เมื่ออุณหภูมิในการทำปฏิกิริยาสูงขึ้น โดยตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจล ให้ค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์เป็นร้อยละ 100 ที่อุณหภูมิ 210 องศาเซลเซียส ส่วนตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจลชั้นตอนเดียว ให้ค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์เป็น 100 ที่อุณหภูมิ 220 องศาเซลเซียส ซึ่งการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยาด้วยวิธีโซลเจล และโซลเจลชั้นตอนเดียว เป็นวิธีที่ให้พื้นที่ผิวจำเพาะสูง เนื่องจากโครงสร้างของของแข็งอยู่ในรูปโครงผลึกร่างตาข่ายที่มีตัวทำละลายอยู่ในโครงตาข่ายนั้น เมื่อทำการอบและเผา ตัวทำละลายจะระเหยออกไปจากโครงผลึก เหลือเป็นรูพรุนจึงทำให้มีพื้นที่ผิวจำเพาะสูง โดย Vazquez *et al.*, 2001: และ Sreethawong *et al.* (2009) ทำการศึกษาคุณสมบัติเฉพาะของตัวเร่งปฏิกิริยา ที่เตรียมโดยวิธีโซลเจล และโซลเจลชั้นตอนเดียว พบว่าตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองให้ค่าพื้นที่ผิวจำเพาะสูง โดยวิธีโซลเจลให้พื้นที่ผิวจำเพาะสูงกว่าโซลเจลชั้นตอนเดียว

สำหรับงานวิจัยนี้พื้นที่ผิวจำเพาะของตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองต่างกันน้อยมากอาจจะเป็นเพราะปริมาณอลูมิเนียมออกไซด์น้อยจึงส่งผลให้เกิดการพังทลายของผนังออกไซด์ในขั้นตอนการเผา (Gu *et al.* 2020)



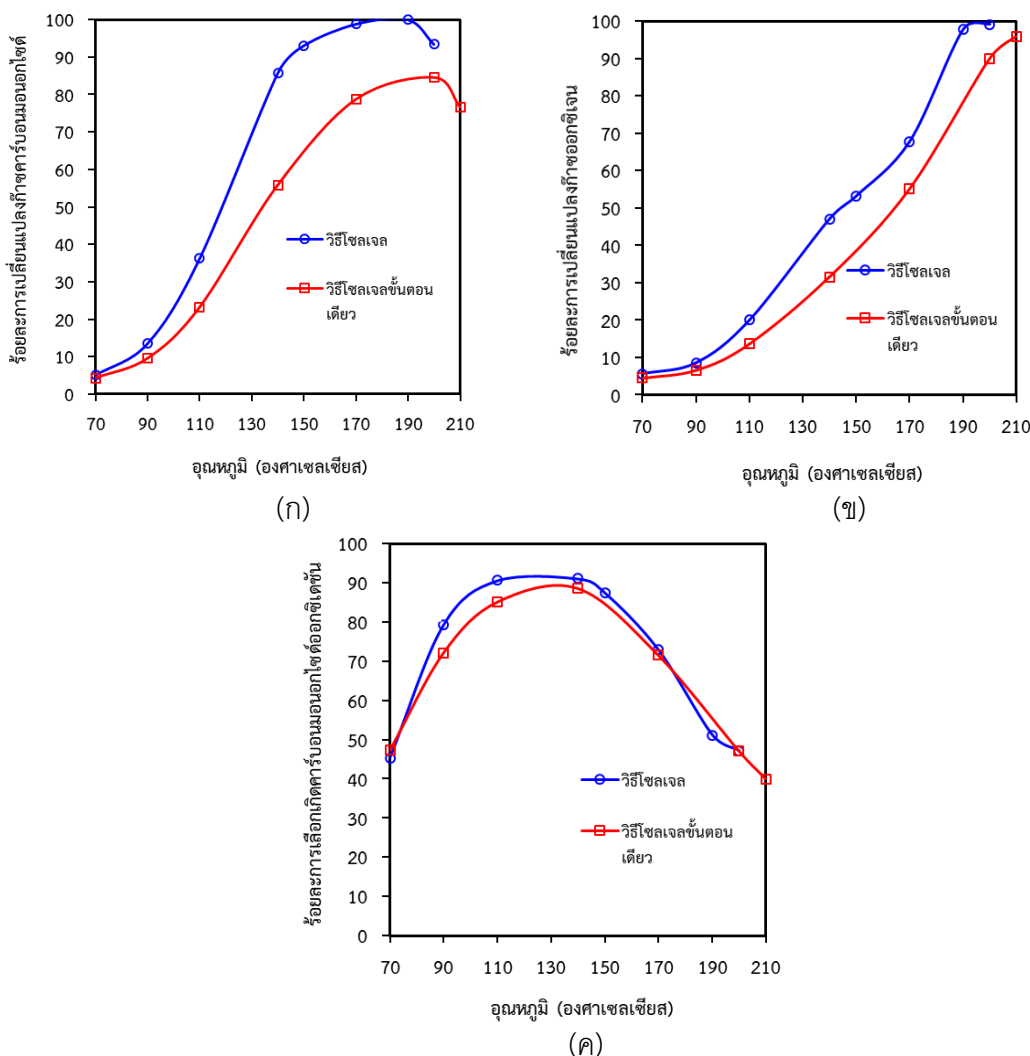
ภาพที่ 3 ร้อยละการเปลี่ยนแปลงคาร์บอนมอนอกไซด์เป็นฟังก์ชันกับอุณหภูมิสำหรับปฏิกิริยา  
คาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน

#### 4.3 ปฏิกิริยาการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน

ในการทดสอบการเร่งปฏิกิริยาเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน ในสภาวะที่มีก๊าซไฮโดรเจนในปริมาณมากเกินไป องค์ประกอบของก๊าซผสมจะมีก๊าซไฮโดรเจนเพิ่มเข้ามาในปริมาณร้อยละ 50 โดยปริมาตร ผลการทดสอบแสดงดังภาพที่ 4

พิจารณาภาพที่ 4 (ก) พบว่าแนวโน้มการดำเนินไปของปฏิกิริยาของตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองเป็นไปในทิศทางเดียวกัน คือการเพิ่มอุณหภูมิส่งผลให้ปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันเกิดได้ดี และเข้าสู่ค่าสูงสุดที่อุณหภูมิหนึ่ง เมื่อเพิ่มอุณหภูมิในการทำปฏิกิริยาต่อไปค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงคาร์บอนมอนอกไซด์มีค่าลดลง ขณะที่ร้อยละการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันมีค่าต่ำที่อุณหภูมิสูง หมายความว่าที่อุณหภูมิสูงปฏิกิริยาไฮโดรเจนออกซิเดชันเกิดได้ดีกว่าปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันนั่นเอง โดยตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจลขั้นตอนเดียว จะให้ค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงคาร์บอนมอนอกไซด์ต่ำกว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจลเสมอ เมื่อพิจารณาค่าร้อยละการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน (ภาพที่ 4 (ค)) พบว่าตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองให้ค่าร้อยละการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชันใกล้เคียงกัน ผลการทดลองนี้แสดงให้เห็นว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจลขั้นตอนเดียว สามารถเร่งปฏิกิริยา

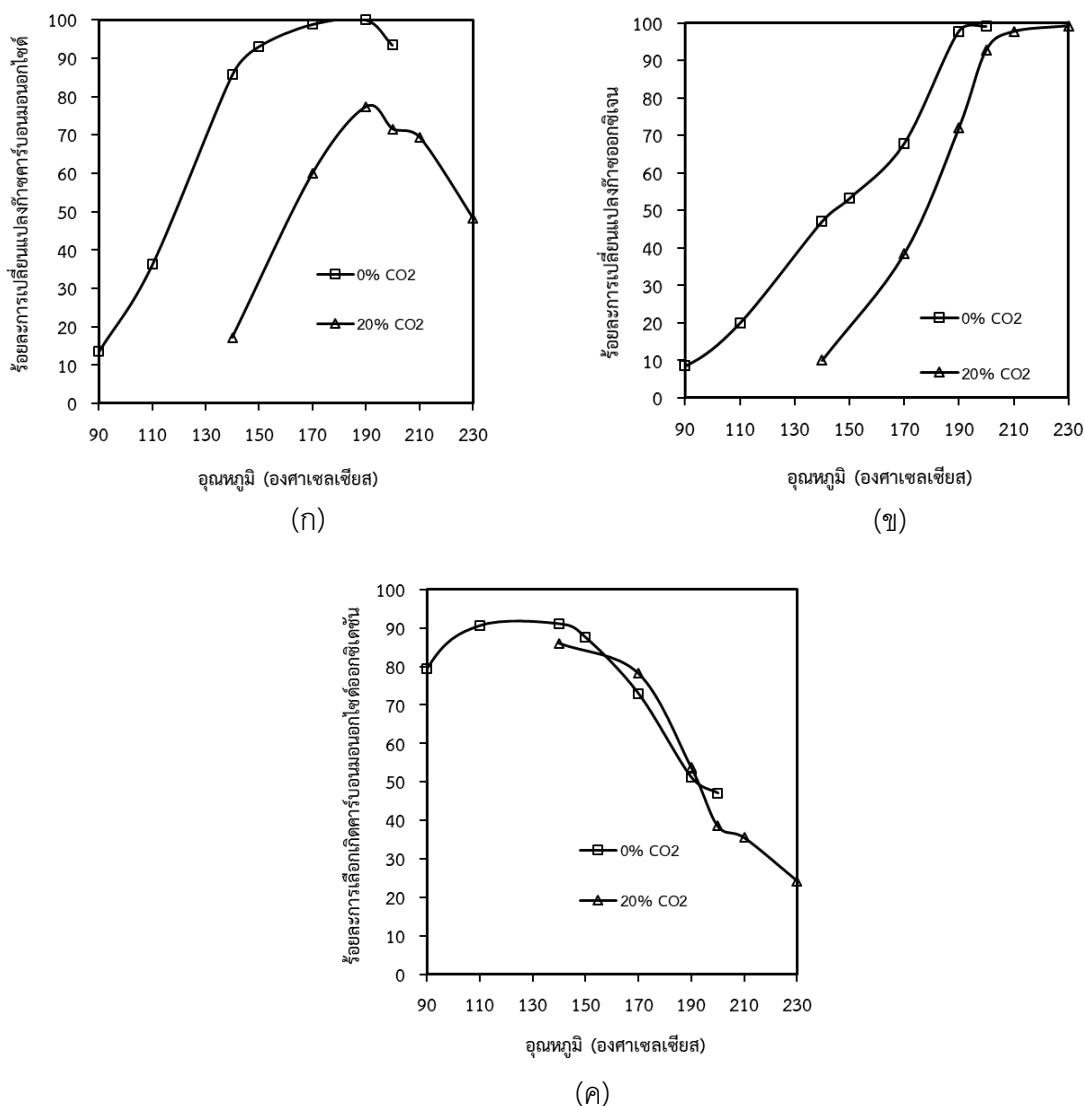
ไฮโดรเจนออกไซด์ได้ดีกว่าปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกไซด์ขึ้น สาเหตุที่ตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองที่มีองค์ประกอบในตัวเร่งปฏิกิริยาเดียวกัน แต่เร่งปฏิกิริยาได้แตกต่างกัน อาจเป็นเพราะวิธีการเตรียมตัวเร่งปฏิกิริยา ส่งผลกระทบต่อขนาดผลึกของโลหะออกไซด์ในตัวเร่งปฏิกิริยา เป็นที่ทราบว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจลขั้นตอนเดียว จะให้ขนาดผลึกโลหะออกไซด์ที่ใหญ่กว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมโดยวิธีโซลเจล (Moretti *et al.*, 2014) งานวิจัยนี้ขนาดผลึกคอป-เปอร์ออกไซด์ ที่เตรียมวิธีโซลเจลขั้นตอนเดียวมีขนาดผลึกของโลหะใหญ่กว่าตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยโซลเจล ขณะที่ขนาดผลึกซีเรียมออกไซด์ของทั้งสองใกล้เคียงกัน ดังนั้นผลการเร่งปฏิกิริยาที่ดีขึ้นสืบเนื่องจากขนาดผลึกของคอปเปอร์ออกไซด์นั่นเอง (Zang *et al.*, 2020)



ภาพที่ 4 ผลการทดสอบตัวเร่งปฏิกิริยาในสถานะที่มีก๊าซไฮโดรเจนมากเกินไป

(ก) ร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ (ข) ร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซซัลเฟอร์ไดออกไซด์

(ค) ร้อยละค่าการเลือกเกิดปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกไซด์



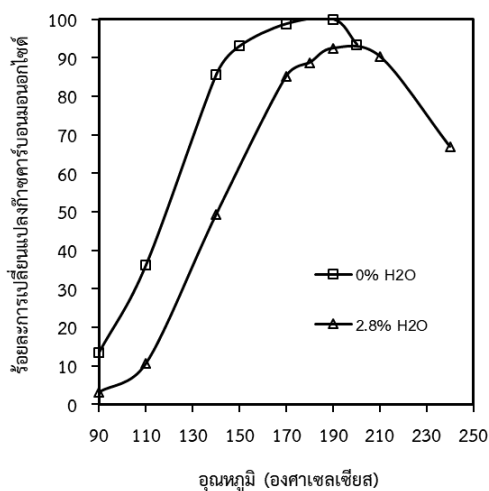
ภาพที่ 5 ผลกระทบของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ในกระแสน้ำต่อการเร่งปฏิกิริยาของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจล (ก) ร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ (ข) ร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซออกซิเจน (ค) ร้อยละค่าการเลือกเกิดปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน

ภาพที่ 5 พบว่า การเติมก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ในกระแสน้ำส่งผลกระทบบนทางลบต่อการเร่งปฏิกิริยา โดยค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงคาร์บอนมอนอกไซด์มีค่าลดลงที่อุณหภูมิเดียวกัน เมื่อเปรียบเทียบกับ กรณีที่ไม่มีก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ในกระแสน้ำ สาเหตุที่ก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ส่งผลกระทบบนทางลบ อาจจะเนื่องมาจากที่อุณหภูมิต่ำกว่า 190 องศาเซลเซียส โมเลกุลของก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ดูดซับบนตำแหน่งกัมมันต์ ส่งผลให้อัตราการใช้ก๊าซออกซิเจนและก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ลดลง (Polster *et al.*, 2006) อย่างไรก็ตามเมื่ออุณหภูมิในการทำปฏิกิริยาสูงกว่า 190 องศาเซลเซียส ค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ยังคงลดลงทั้ง 2 กรณี

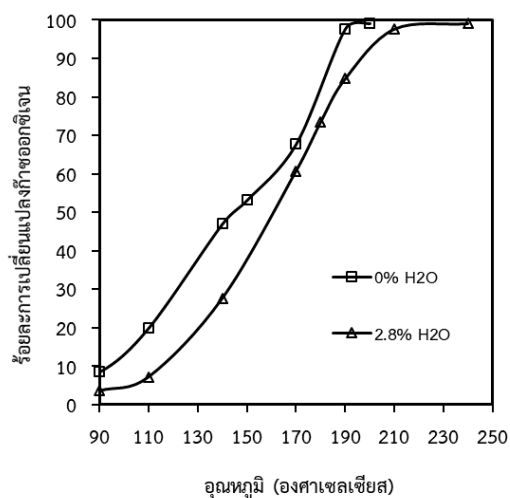
ทั้งนี้อาจเนื่องมาจากในกระแสน้ำมีก๊าซไฮโดรเจนร้อยละ 50 และก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์ร้อยละ 20 โดยปริมาตร ก๊าซทั้งสองสามารถทำปฏิกิริยาตามปฏิกิริยาย้อนกลับของการซิฟน้ำ ( $\text{CO}_2 + \text{H}_2 \leftrightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{CO}$ , Reverse water gas shift reaction) และผลการทดสอบพบว่าตัวเร่งปฏิกิริยาดังกล่าวพบว่า สามารถเร่งปฏิกิริยาการซิฟกลับของน้ำได้ที่อุณหภูมิ 210 องศาเซลเซียส มีก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์เกิดขึ้น 131.5 พีพีเอ็ม ที่อุณหภูมิในการทำปฏิกิริยาเป็น 240 องศาเซลเซียส มีก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์เกิด 592.4 พีพีเอ็ม และเมื่อเพิ่มอุณหภูมิในการทำปฏิกิริยาเป็น 270 องศาเซลเซียส มีก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์เกิด 2068.0 พีพีเอ็ม เมื่อมีการเพิ่มอุณหภูมิสูงขึ้นทำให้ปฏิกิริยาดังกล่าวสามารถเกิดได้ดีขึ้น แต่สำหรับที่อุณหภูมิต่ำกว่า 190 องศาเซลเซียส พบว่าไม่มีก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์เกิดขึ้น ดังนั้นการลดลงของค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ที่อุณหภูมิมีสาเหตุจากปฏิกิริยาย้อนกลับของการซิฟของน้ำนั่นเอง

นอกจากนั้นแล้วรีฟอร์มก๊าซยังมีน้ำเป็นองค์ประกอบประมาณร้อยละ 10-15 โดยปริมาตรของก๊าซผสมรวม น้ำบางส่วนถูกใช้ไปในปฏิกิริยาซิฟน้ำ และบางส่วนถูกดึงออกจากระบบ การศึกษาผลกระทบของน้ำจึงมีข้อมูลสำคัญที่จะใช้ในการตัดสินใจสถานะการทำงานของตัวเร่งปฏิกิริยาในระบบจริง ในการทดลองนี้ตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซลเจลจะถูกนำมาทดสอบความว่องไวในการเร่งปฏิกิริยา ภายใต้สภาวะก๊าซผสมที่ประกอบด้วยก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ร้อยละ 1 โดยปริมาตร ก๊าซไฮโดรเจนร้อยละ 50 โดยปริมาตร ก๊าซออกซิเจนร้อยละ 1 โดยปริมาตร น้ำร้อยละ 2.8 โดยปริมาตร และก๊าซฮีเลียมร้อยละ 45.2 โดยปริมาตร ผลการทดลองแสดงดังภาพที่ 6

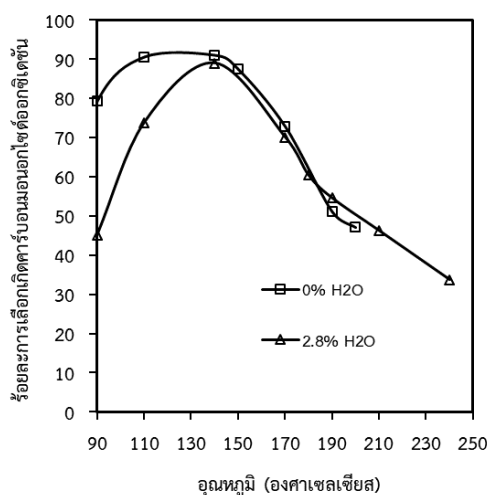
ภาพที่ 6 (ก) และ (ข) แสดงให้เห็นว่าเมื่อน้ำร้อยละ 2.8 โดยปริมาตรในกระแสน้ำส่งผลกระทบต่อความสามารถในการเร่งปฏิกิริยา โดยค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงคาร์บอนมอนอกไซด์ลดลงในทุกช่วงอุณหภูมิ และค่าร้อยละการใช้ก๊าซออกซิเจน เพิ่มขึ้นอย่างช้าๆ เมื่อเปรียบเทียบกับกรณีที่ไม่มีน้ำในกระแสน้ำ ซึ่งสาเหตุอาจจะเกิดได้จากที่อุณหภูมิต่ำ โมเลกุลของน้ำมีการดูดซับเชิงกายภาพบนตำแหน่งกัมมันต์ที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาของก๊าซออกซิเจนกับก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ ส่งผลให้ก๊าซออกซิเจนทำปฏิกิริยากับก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ลดลง แต่ที่อุณหภูมิสูงขึ้นโมเลกุลของน้ำมีการระเหยออกจากตำแหน่งกัมมันต์ ส่งผลให้ค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์มีค่าใกล้เคียงกับกรณีที่ไม่มีน้ำ (Zou *et al.*, 2005) ทั้งนี้ได้ทดสอบปฏิกิริยาการซิฟของน้ำ กำหนดให้กระแสน้ำประกอบด้วย ก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ร้อยละ 1 โดยปริมาตร น้ำร้อยละ 2.8 โดยปริมาตร และที่เหลือเป็นก๊าซฮีเลียม พบว่าในช่วงอุณหภูมิ 70-190 องศาเซลเซียส ไม่มีปฏิกิริยาดังกล่าวเกิดขึ้น



(ก)



(ข)



(ค)

ภาพที่ 6 ผลกระทบของน้ำต่อความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาของตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซล เจล (ก) ร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ (ข) ร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซออกซิเจน (ค) ร้อยละค่าการเลือกเกิดปฏิกิริยาคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน

## 5. สรุปผล

ตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซล เจล และโซล เจล ขึ้นตอนเดียวให้ผลการเร่งปฏิกิริยาคาร์บอน มอ-นออกไซด์ออกซิเดชันได้ใกล้เคียงกัน เมื่อมีก๊าซไฮโดรเจนร้อยละ 50 โดยปริมาตรในสายป้อน พบว่า การเร่งปฏิกิริยาของตัวเร่งปฏิกิริยาทั้งสองจะแตกต่างกัน โดยตัวเร่งปฏิกิริยาที่เตรียมด้วยวิธีโซล เจล มีความสามารถในการเร่งปฏิกิริยาที่ดีกว่า โดยสามารถกำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ได้สมบูรณ์ที่ อุณหภูมิ 180 องศาเซลเซียส ที่ค่าร้อยละการเลือกเกิดคาร์บอนมอนอกไซด์ออกซิเดชัน 65.0 ทั้งนี้สืบ เนื่องจากวิธีโซล เจล ให้ขนาดผลึกของคอปเปอร์ออกไซด์เล็กกว่าวิธีโซล เจล ขึ้นตอนเดียว นอกจากนี้

ก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์และน้ำส่งผลกระทบบนทางลบต่อการเร่งปฏิกิริยา โดยก๊าซคาร์บอนไดออกไซด์เกิดการดูดซับเชิงกายภาพบนตำแหน่งกัมมันต์ ส่งผลให้สูญเสียพื้นที่ผิวในการดูดซับเชิงเคมีของก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์และก๊าซออกซิเจนในช่วงอุณหภูมิต่ำกว่า 190 องศาเซลเซียส ส่งผลให้เกิดปฏิกิริยาลดลง ที่อุณหภูมิสูงกว่า 190 องศาเซลเซียส การลดลงของค่าร้อยละการเปลี่ยนแปลงก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์เกิดจากการเกิดปฏิกิริยา Reverse water gas shift และปฏิกิริยาไฮโดรเจนออกไซด์ เช่น ดังนั้นการใช้ตัวเร่งปฏิกิริยาโลหะออกไซด์ผสมคอปเปอร์ ซีเรียม และอลูมิเนียม ที่เตรียมด้วยวิธีการโซล เจล จึงมีความเหมาะสมหรือเป็นตัวเลือกที่ดีในการนำมาใช้กำจัดก๊าซคาร์บอนมอนอกไซด์ในไฮโดรเจนก่อนนำไปใช้กับเซลล์เชื้อเพลิง

## 6. กิตติกรรมประกาศ

งานวิจัยนี้ได้รับทุนสนับสนุนจากคณะวิศวกรรมศาสตร์มหาวิทยาลัยบูรพา สัญญาเลขที่ 19/2553

## 7. เอกสารอ้างอิง

- Bae, C.M., Ko, J.B. & Kim, D.H. (2005). Selective catalytic oxidation of carbon monoxide with carbon dioxide, water vapor and excess hydrogen on CuO-CeO<sub>2</sub> mixed oxide catalyst. **Catalysis communication**, 6, 507-511. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.catcom.2005.04.017>
- Brinker, C.J. & Scherer, G.W. (1990). **Sol-Gel Science: The Physics and Chemistry of Sol-Gel Processing**. New York: ACADEMIC PRESS, INC.
- Chen, Y.Z., Liaw, B.J., Wang, J.M. & Huang, C.T. (2008). Selective removal of CO from hydrogen rich stream over CuO/Ce<sub>x</sub>Sn<sub>1-x</sub>O<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts. **International Journal of hydrogen energy**, 33, 2389-2399. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2008.02.056>
- Cortés, A.G., Márquez, Y., Alatorre, J.A. & Díaz, G. (2008). Selective CO oxidation in excess of H<sub>2</sub> over high surface area CuO/CeO<sub>2</sub> catalysts. **Catalysis Today**, 133-135, 734-740. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.cattod.2007.12.083>
- Ebrahimi, P., Kumar, A. & Khraisheh, M. (2020). A review of recent advances in water-gas shift catalysis for hydrogen production. **Emergent Materials**, 3, 881-917. Doi: <https://doi.org/10.1007/s42247-020-00116-y>

- Esposito, S. (2019). "Traditional" sol-gel chemistry as a powerful tool for the preparation of supported metal and metal oxide catalysts. **Materials**, 12, 668. Doi: <https://doi.org/10.3390/ma12040668>
- Gu, C., Liu, R., Wang, C., Sun, Y., & Zhang, S. (2020). Effect of aluminum on microstructure and high-temperature oxidation resistance of austenitic heat-resistant steel. **Metals**, 10(2), 176. Doi: <https://doi.org/10.3390/met10020176>
- Hargreaves, J.S.J. (2016). Some considerations related to the use of the Scherrer equation in powder X-ray diffraction as applied to heterogeneous catalysts. **Catalysis, Structure & Reactivity**, 2, 33-37.
- Huber, F., Venvik H., Ronning M., Walmsley J., & Holmen A. (2008). Preparation and characterization of nanocrystalline, high-surface area Cu Ce Zr mixed oxide catalysts from homogeneous coprecipitation. **Chemical Engineering Journal** 137, 686-702. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.cej.2007.07.025>
- Kakuta N., Morishima N., Kotobuki M., Iwase T., Mizushima T., Sato Y. & Matsuura S. (1997). Oxygen storage capacity (OSC) of aged Pt/CeO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts: roles of Pt and CeO<sub>2</sub> supported on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. **Applied Surface Science**, 121-122, 408-412. Doi: [https://doi.org/10.1016/S0169-4332\(97\)00346-2](https://doi.org/10.1016/S0169-4332(97)00346-2)
- Manasilp, A. & Gulari, E. (2002). Selective oxidation of Pt/alumina catalysts for fuel cell application, **Applied Catalysis B: Environmental**, 37, 17-25. Doi: [https://doi.org/10.1016/S0926-3373\(01\)00319-8](https://doi.org/10.1016/S0926-3373(01)00319-8)
- Qi Z., He C. & Kaufman A. (2020). Effect of CO in the anode fuel on the performance of PEM fuel cell cathode. **Journal of Power Sources**, 111, 239-247. Doi: [https://doi.org/10.1016/S0378-7753\(02\)00300-2](https://doi.org/10.1016/S0378-7753(02)00300-2)
- Moretti, E., Lenarda, M., Storaro, L., Talon, A., Montanari, T., Busca, G., Rodriguez-Castellon, E., Jimenez-Lopez, A., Turco, M., Bagnasco, G. & Frattini, R. (2008). One-step synthesis of a structurally organized mesoporous CuO-CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> system for the preferential CO oxidation. **Applied Catalysis A: General**, 335, 46-55. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.apcata.2007.11.009>
- Polster, C.S., Nair, H. & Baertsch, C.D. (2006). Study of active sites and mechanism responsible for highly selective CO oxidation in Hydrogen rich atmospheres on a

- mixed Cu and Ce oxide catalyst. **Journal of Catalysis**, 266, 308-319.  
Doi: <https://doi.org/10.1016/j.jcat.2009.06.021>
- Qi Z., He C. & Kaufman A. (2020). Effect of CO in the anode fuel on the performance of PEM fuel cell cathode. **Journal of Power Sources**, 111, 239- 247.  
Doi: [https://doi.org/10.1016/S0378-7753\(02\)00300-2](https://doi.org/10.1016/S0378-7753(02)00300-2)
- Ratnasamy, P., Srinivas, D., Satyanarayana, C.V.V., Manikandan, P., Kumaran, R.S.S., Sachin, M. & Shetti, V.N. (2004). Influence of the support on the preferential oxidation of CO in hydrogen-rich steam reformats over the CuO-CeO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub> system. **Journal of catalysis**, 221, 454 - 465 .  
Doi: <https://doi.org/10.1016/j.jcat.2003.09.006>
- Sarma, B.B., Plessow, P.N., Agostini, G., Concepción, P., Pfänder, N., Kang, L., Wang, F.R., Studt, F. & Prieto, G. (2020). Metal-specific reactivity in single-atom Catalysts: CO Oxidation on 4d and 5d Transition Metals Atomically Dispersed on MgO. **Journal of American Chemical Society**, 142(35), 14890-14902.  
Doi: <https://doi.org/10.1021/jacs.0c03627>
- Sreethawong, T., Suzuki, Y. & Yoshikawa, S. (2009). Platinum-loaded mesoporous titania by single-step sol-gel process with surfactant template: photocatalytic activity for hydrogen evolution. **Comptes Rendus Chimie**, 9, 307 - 314 .  
Doi: <https://doi.org/10.1016/j.crci.2005.05.015>
- Thommes, M. (2010). Physical adsorption characterization of nanoporous materials, **Chemie Ingenieur Technik**, 82(7), 1059-1071.
- Vazquez, A., Lopez, T., Gomez, R. & Bokhimi, X. (2001). Synthesis, characterization and catalytic properties of Pt/ CeO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Pt/ La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sol-gel derived catalysts. **Journal of Molecular Catalysis A: Chemical**, 167, 91 - 99 .  
Doi: [https://doi.org/10.1016/S1381-1169\(00\)00495-7](https://doi.org/10.1016/S1381-1169(00)00495-7)
- Walton, K.S. & Snurr, R.Q. (2007). Applicability of the BET method for determining surface areas of microporous metal-organic frameworks. **Journal of American Chemical Society**, 129(27), 8552-8556.
- Xu C., Li S., Zhang Y., Li Y., Zhou J., & Qin G. (2019). Synthesis of CuO<sub>x</sub>-CeO<sub>2</sub> catalyst with high-density interfaces for selective oxidation of CO in H<sub>2</sub>-rich stream.



**International Journal of Hydrogen Energy**, 44 ( 8 ) , 4156 - 4166 .

Doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2018.12.152>

Zhang X., Su L., Kong Y., Ma D., Ran Y., Peng S., Wang L. & Wang Y. (2020). CeO<sub>2</sub> nanoparticles modified by CuO nanoparticles for low-temperature CO oxidation with high catalytic activity. **Journal of Physics and Chemistry of Solids**, 147, 109651. Doi: <https://doi.org/10.1016/j.jpcs.2020.109651>

Zou, H., Dong, X. & Lin, W. (2005). CO Selective oxidation in hydrogen-rich gas over Cu-Ce Catalyst. **Journal of natural gas chemistry**, 14, 43-53.